

284905DD

PTO 2005-0162

Translated from the GERMAN

FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY

**PATENT SPECIFICATION**

**DD 284 905 A5**

Patent of exclusion

Granted pursuant to § 17 Sec 1 of the patent law of the G.D.R. of October 27, 1983 in conformity with the corresponding provisions in the Unification Treaty [of Germany].

**GERMAN PATENT OFFICE**

Published in the formulation submitted by the applicant

---

Date of application: January 4, 1988

Date of making available to the public by printing or similar process of an examined document, on which no grant or only a provisional grant has taken place on or before the said date: November 28, 1990

---

Inventors; Joachim Klose et al.

Name of grantee: VEB Mansfeld Kombinat Wilhelm Pieck, Forschungsinstitut für NE-Metalle, Lessingstraße 41, Freiberg, 9200, DD

---

[Title in German of the object of the invention:]

Tantallegierung für Spinnndüsen

---

**TANTALUM ALLOY FOR SPINNERETS**

Patent Claim

Tantalum alloy for spinnerets, which has a grain-refined alloying contribution, characterized in that the alloy consists of 99.7 to 99.97% [W<sub>B</sub>\*] by weight of tantalum, 0.01 to 0.10 % by weight niobium and 0.02 to 0.10 % by weight of molybdenum, and the content of usual impurities does not exceed 0.10 % by weight.

\*[\*Translator's note: Throughout the German original text, the applicant/inventors have used abbreviation  $W_B$  to indicate the content of alloy in %. Such an abbreviation,  $W_B$ , does not exist in the German professional literature. Presumably, it is an abbreviation used by professionals in the now defunct GDR. It is assumed that the inventors have tried to indicate % by weight.]

### Title of the Invention

Tantalum alloy for Spinnerets

### Area of Application of the Invention

The invention pertains to a tantalum alloy, produced in a melt-metallurgical way, which alloy can be used for spinnerets in the synthetic-fibers industry.

### Characteristics of the known Prior Art

Spinnerets of tantalum are used on a large scale in the synthetic-fiber industry. Those spinnerets are deep-drawn [swaged] cups, which are first of all made of a melt-metallurgically produced semi-manufactured product [blank], and, subsequently, are provided with a large number of fine boreholes, having a diameter from 60 to 100  $\mu\text{m}$ , by means of piercing or punching. It is known that the capability of tantalum to pierce

or punch is influenced by the purity of the metal, its hardness, depositions on the grain boundaries, and the grain size.

As is generally known, the melting in electron bombardment furnaces exerts influence upon the purity of the metal. However, in doing so, there are generated grain sizes of up to few millimeters. Therefore, trials have been conducted to process tantalum, produced in a melt-metallurgical way, into a sheet metal [metal-sheet], having a thickness of 0.4 to 0.5 mm and characteristic or pronounced fine grain. In accordance with the D.D.R. Economic patent DD-WP 142120, the tantalum ingot [block] t, which has been smelted in an electron-bombardment furnace, was compressed or forged into a cube as a result of being subjected to upset forging, and after a rotation thru 90°, it is pressed or cold-shaped into a sheet, which subsequently is rolled into a metal-sheet as a result of plastic cold working with the help of interposed high-vacuum annealing. Grain sizes, having an average grain diameter of 0.03 to 0.04 mm, are achieved with the help of that method.

When spinnerets, manufactured of that tantalum metal sheet, are pierced, the hard-metal [cemented metal-carbide] piercing needles, used for this purpose, exhibit a short service life. On the average, 2,000 to 4,000 [die-spinning] nozzles holes can be pierced with the help of a needle. Another possibility for the reduction of the grain size consists in the addition of alloying metals [alloying additives]. The recrystallization properties of

substitutional alloys, based on tantalum, has been investigated by GYPEN and DERUYTTERE (see Journal 'Metallkunde' 72, (1981) 8, pp 530-533. Among other things, the influence of molybdenum and niobium upon the anomalous crystal growth, which easily occurs in pure tantalum, melted in an electron-bombardment manner, is studied. As a result of the alloying of molybdenum in ratios between 0.32 to 0.70 % by weight, grain sizes, having an average diameter of 0.06 to 0.09 mm are achieved, when the annealing is carried out at the technologically conventional temperature range of 1,000 to 1,200 °C. With niobium, in its capacity as alloying element, in ratios of 2.0 and 4.2 % by weight, there is formed an average grain diameter of 0.06 mm. Also, with grain sizes, which can be adjusted within the cited concentrations, as a result of the alloying of molybdenum or niobium, an extension of the service-life properties of the piercing needles, used for piercing of the spinnerets, does not take place.

#### Aim of the Invention

The aim of the invention consists in providing a tantalum alloy, having an adequate capability to pierce, with the help of which tantalum alloy the service life of the hard-metal piercing needles, used for the piercing of spinnerets, is extended.

#### Explanation of the Substance of the Invention

The objective to provide a tantalum alloy, which has a particularly fine-grained texture, and, as a result of this, is particularly suitable for the process of piercing with the help of hard-metal piercing needles, forms the basis of the invention.

In accordance with the invention the set objective is achieved as a result of the fact that the alloy consists of 99.7 to 99.97% by weight of tantalum and 0.01 to 0.10 % by weight of niobium, and 0.02 to 0.10 % by weight of molybdenum, and the content of conventional impurities does not exceed 0.1 % by weight. When this alloy is processed into a metal sheet, having a thickness of 0.23 to 0.50 mm, in accordance with the known methods for the manufacturing of tantalum sheet-metal, the alloy [composition metal] in accordance with the invention exhibits a particular recrystallization texture in conjunction with an uniform fine-grained texture. An average grain diameter of 0.008 to 0.20 mm is achieved. The particular or special recrystallization texture is characterized by an elevated percentage of crystallites, whose surfaces are arranged so that the crystallographic orientation is parallel to the rolling plane.

When the alloy in accordance with the invention is used for spinnerets, significantly longer periods of service life of the hard-metal piercing needles are attained - namely in the order of 6,000 to 8,000 spinnerets' holes/needle - in comparison to the periods of service life of the piercing needles made of pure

tantalum, used in piercing the holes of the spinnerets. This result cannot be explained with the known regularities of the plastic deformation of metals, having a cubic body-centered [body-centered cubic] lattice. In the metals, having a body-centered cubic [bcc] lattice (e.g.,  $\alpha$ -Fe, Mo, Nb, Ta, W), the plastic deformation takes preferably place in the {111}- glide (slip) plane in the  $\langle 111 \rangle$ -directions (see the textbooks by SCHULZE, G.E.R., Metallphysik [Physics of Metals], Akademie-Verlag, Berlin, 1974, p 221 and SCHATT, W., Einführung in die Werkstoffwissenschaft [Introduction in the Materials Science], VEB Deutscher Verlag für die Grundstoffindustrie, Leipzig, 1984, p 337).

A preferred plastic deformation perpendicular to {100}-surfaces is not to be expected. The advantageous effect of the additives of niobium and molybdenum in the cited concentrations consists in the change of the texture, the significant reduction of the crystallite size, and in a modified composition on the crystallite boundaries without a perceptible increase of the hardness and reduction of the ductility (elongation at rupture). As a result of this, the capability of the material to pierce is improved as a result of a minor cold-welding tendency between the tantalum alloy and the hard-metal piercing needle. Moreover, as a consequence of the small crystallite size, the danger of an occurrence of deleterious bending stress for the tip of the piercing needle is reduced. All this leads to an elongation of

the service life of the piercing needles.

#### Exemplified Embodiment

Using tantalum secondary material and niobium wire, a tantalum alloy, having a content of 0.04 % by weight of niobium and 0.02 % by weight of molybdenum, is melted in an electron bombardment furnace. After a surface treatment, the cast ingot was cold shaped [subjected to plastic cold working] by means of desurfacing. This cold shaping took place on a free-forging [hammer-forging press] whereby the cast ingot was forged [subjected to upset forging], and after a rotation thru 90° was pressed into a sheet [plate]. During the mechanical working [or shaping, the ingot [block] was kept at a room temperature by being cooled. After an additional surface treatment, the sheet was rolled into a strip, having a thickness of 3 mm. After a total cold face [cold] working of 98.5%, a recrystallization in high vacuum took place at a temperature of 1,100 °C/1 hr. After the rolling on the end thickness, there took place a final high-vacuum annealing at 1,200 °C/1 hr or 1,000 °C/2h. The results of the roentgenographical (X-ray photographic) texture analysis speak of an elevated percentage of the texture component (100)[110] in comparison to pure tantalum.

An average grain diameter of 0.015 mm was attained. The spinneret blanks, made of this alloy, are characterized by a

particularly adequate processing properties. With the help of a hard-metal piercing needle, the manufacturing of 6,240 [spinneret-]nozzle holes in a spinneret was possible.

Translated by JOHN M KOYTCHIEFF, MSc (Engrg.);  
WHO Postgraduate Fellow (Environmental Engineering);  
Graduate, USNWC/USNC&SC  
The USPTO TRANSLATOR (GERMAN & Germanic languages)  
October 20, 2004



AN 1991:252111 HCAPLUS  
 DN 114:252111  
 TI Tantalum alloy for spinnerets  
 IN Klose, Joachim; Schwarz, Klaus; Heier, Erhard; Rehtanz, Ella; Weinhold, Alexander  
 PA VEB Mansfeld Kombinat "Wilhelm Pieck", Ger. Dem. Rep.  
 SO Ger. (East), 7 pp.  
 CODEN: GEXXA8  
 DT Patent  
 LA German  
 FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	DD 284905	A5	19901128	DD 1988-332942	19880104
PRAI	DD 1988-332942		19880104		

AB The alloy contains Nb 0.01-0.1, Mo 0.01-0.1, and usual impurities  $\leq 0.1\%$ . The alloy has good workability and can be processed into sheets having a uniform recrystd. texture of an average grain size 0.008-0.02 mm and with (100) plane parallel to the rolling plane. The hard alloy needles used in piercing holes in the spinnerets for chemical fiber industry showed long service lives.



(12) Ausschließungspatent

(11) DD 284 905 A5

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1  
Patentgesetz der DDR  
vom 27. 10. 1983  
in Übereinstimmung mit den entsprechenden  
Festlegungen im Einigungsvertrag

5(51) C 22 C 27/02

DEUTSCHES PATENTAMT

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21)	DD C 22 C / 332 942 6	(22)	04.01.88	(44)	28.11.90
(71)	siehe (73)				
(72)	Klose, Joachim, Dipl.-Ing.; Schwarz, Klaus, Dr.-Ing. Dipl.-Met.; Heier, Erhard, Dr.-Ing. Dipl.-Met.; Rehtanz, Ella, Dipl.-Ing.; Weinhold, Alexander, DD				
(73)	VEB Mansfeld Kombinat Wilhelm Pieck, Forschungsinstitut für NE-Metalle, Lessingstraße 41, Freiberg, 9200, DD				
(54)	Tantallegierung für Spinddüsen				

(55) Tantallegierung; Spinddüse; Tantal; Niob; Molybdän; Rekristallisationstextur; Gefüge; Korndurchmesser; Düsenloch; Hartmetallstechnadel

(57) Die Erfindung ist eine Tantallegierung für Spinddüsen in der Chemiefaserindustrie. Die Legierung besteht aus 99,7–99,97 w<sub>8</sub> in % Tantal und 0,01–0,1 w<sub>8</sub> in % Niob und 0,02–0,1 w<sub>8</sub> in % Molybdän; der Gehalt an üblichen Verunreinigungen darf 0,1 w<sub>8</sub> in % nicht überschreiten. Durch den Zusatz der Legierungsmetalle in den angegebenen Gehalten wird bei der Verarbeitung dieser Legierung zu Blech mit bekannten Verfahren eine Rekristallisationstextur mit einem erhöhten Anteil an Kristalliten erreicht, deren Flächen mit der kristallographischen (100)-Orientierung parallel zur Walzebene angeordnet sind, sowie ein gleichmäßiges feinkörniges Gefüge, welches einen mittleren Korndurchmesser von 0,008–0,02 mm aufweist. Dieses Blech zeichnet sich durch eine besonders gute Bearbeitbarkeit aus. Beim Stechen der Düsenlöcher in den Spinddüsen werden hohe Standzeiten der Hartmetallstechnadel erreicht.

1998

Patentanspruch

Tantallegierung für Spinndüsen mit kornfeinendem Legierungsanteil, gekennzeichnet dadurch, daß die Legierung aus 99,7 - 99,97 w<sub>B</sub> in % Tantal, 0,01 - 0,1 w<sub>B</sub> in % Niob und 0,02 - 0,1 w<sub>B</sub> in % Molybdän besteht und der Gehalt an üblichen Verunreinigungen 0,1 w<sub>B</sub> in % nicht überschreitet.

Titel der Erfindung

Tantallegierung für Spinndüsen

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft eine schmelzmetallurgisch hergestellte Tantallegierung, die für Spinndüsen in der Chemiefaserindustrie verwendet werden kann.

Charakteristik des bekannten Standes der Technik

In der Chemiefaserindustrie werden im großen Umfang Spinndüsen aus Tantal eingesetzt. Diese Spinndüsen sind tiefgezogene Näpfchen, die zunächst aus einem schmelzmetallurgisch erzeugten Halbzeug hergestellt und anschließend mit einer großen Anzahl von Feinbohrungen mit einem Durchmesser von 60 - 100  $\mu$ m durch Stechen versehen werden. Es ist bekannt, daß die Stechbarkeit des Tantals beeinflußt wird durch die Reinheit des Metalls, durch seine Härte, durch Ausscheidungen an den Korngrenzen und durch die Korngröße.

Auf die Reinheit des Metalls wird bekanntermaßen durch das Schmelzen im Elektronenstrahl-Ofen Einfluß genommen. Dabei werden jedoch Korngrößen von bis zu wenigen Millimetern erzeugt. Es hat daher Versuche gegeben, auf schmelzmetallurgischem Wege hergestelltes Tantal zu einem Blech von 0,4 - 0,5 mm Dicke mit ausgeprägtem Feinkorn zu verarbeiten. Gemäß DD-WP 142120 wird dazu der aus Tantal-Sekundärmetall im Elektronenstrahl-Ofen erschmolzene Tantalblock zu einem Würfel gestaucht und nach einer 90° - Drehung zu einer Platine gepreßt, die dann anschließend durch Kaltverformung mit zwischengeschalteten Hoch-Vakuumglühungen zum Blech ausgewalzt wird. Erreicht werden mit diesem Verfahren Korngrößen mit einem mittleren Korndurchmesser von 0,03 - 0,04 mm.

Beim Stechen von aus diesem Tantalblech gefertigten Spinn-  
düsen zeigen die dafür verwendeten Hartmetallstechnadeln  
eine geringe Standzeit. Es können mit einer Nadel durch-  
schnittlich nur 2000 bis 4000 Düsenlöcher gestochen werden.

Eine andere Möglichkeit zur Verringerung der Korngröße  
besteht in der Zugabe von Legierungszusätzen. Das  
Rekristallisationsverhalten von Substitutionslegierungen auf  
Tantal-Basis ist von GYPEN und DERUYTTERE untersucht worden  
(Z. Metallkunde 72 (1981) 8, S. 530-533). Unter anderem ist  
der Einfluß von Molybdän und Niob auf das anomale  
Kristallwachstum, das in reinem  
elektronenstrahlgeschmolzenem Tantal leicht auftritt,  
untersucht worden. Durch das Zulegieren von Molybdän in  
Gehalten zwischen 0,32 und 0,7 wg in % werden bei den  
technisch üblichen Glühtemperaturen von 1000 °C bis 1200 °C  
Korngrößen mit einem mittleren Korndurchmesser von 0,06 bis  
0,09 mm erreicht. Mit Niob als Legierungselement in Gehalten  
von 2,0 und 4,2 wg in % bildet sich ein mittlerer  
Korndurchmesser von 0,06 mm aus. Auch mit den Korngrößen, die  
durch das Zulegieren von Molybdän oder Niob in den  
angegebenen Gehalten eingestellt werden können, wird keine  
Erhöhung des Standzeitverhaltens der Stechnadeln beim  
Stechen der Spinn Düsen erreicht.

#### Ziel der Erfindung

Das Ziel der Erfindung besteht darin, eine Tantallegierung  
mit einer guten Stechbarkeit bereitzustellen, mit der die  
Standzeit der Hartmetallstechnadel beim Stechen von  
Spinn Düsen erhöht wird.

#### Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine  
Tantallegierung bereitzustellen, die ein besonders  
feinkörniges Gefüge hat und sich demzufolge besonders für  
das Stechen mit Hartmetallstechnadeln eignet.

Erfindungsgemäß wird die Aufgabe dadurch gelöst, daß die Legierung aus 99,7 - 99,97 w<sub>g</sub> in % Tantal und 0,01 - 0,1 w<sub>g</sub> in % Niob und 0,02 - 0,1 w<sub>g</sub> in % Molybdän besteht und der Gehalt an üblichen Verunreinigungen 0,1 w<sub>g</sub> in % nicht überschreitet. Bei der Verarbeitung dieser Legierung zu Blech von 0,23 bis 0,5 mm Dicke nach bekannten Verfahren zur Herstellung von Tantalblech zeigt die erfindungsgemäße Legierung eine besondere Rekristallisationstextur in Verbindung mit einem gleichmäßig feinkörnigem Gefüge. Es wird ein mittlerer Korndurchmesser von 0,008 - 0,02 mm erreicht. Die besondere Rekristallisationstextur ist durch einen erhöhten Anteil an Kristalliten gekennzeichnet, deren Flächen mit der kristallographischen (100)-Orientierung parallel zur Walzebene angeordnet sind.

Bei Verwendung der erfindungsgemäßen Legierung für Spinndüsen werden im Vergleich zu reinem Tantal beim Stechen der Düsenlöcher wesentlich höhere Standzeiten der Hartmetallstechnadeln erzielt, die bei 6000 bis 8000 Düsenlöchern/Nadel liegen. Dieser Befund kann mit den bekannten Gesetzmäßigkeiten der Verformung von kubisch-raumzentrierten Metallen nicht erklärt werden. In den Metallen mit einem kubisch-raumzentrierten Gitter (z. B.  $\alpha$ -Fe, Mo, Nb, Ta, W) erfolgt die Verformung bevorzugt in den {111}-Gleitebenen in den  $\langle 111 \rangle$ -Richtungen (siehe bei SCHULZE, G. E. R., Metallphysik, Akademie-Verlag, Berlin 1974, S. 221 und SCHATT, W., Einführung in die Werkstoffwissenschaft, VEB Deutscher Verlag für die Grundstoffindustrie, Leipzig 1984, S. 337).

Eine bevorzugte Verformung senkrecht zu {100}-Flächen ist nicht zu erwarten. Die vorteilhafte Wirkung der Zusätze von

234905

5

Niob und Molybdän in den angegebenen Gehalten besteht in der Veränderung der Textur, der bedeutenden Verminderung der Kristallitgröße und einer veränderten Zusammensetzung an den Kristallitgrenzen ohne eine merkliche Zunahme der Härte und Verminderung der Duktilität (Bruchdehnung). Dadurch verbessert sich die Stechbarkeit des Werkstoffs durch eine geringere Kaltschweißneigung zwischen der Tantallegierung und der Hartmetallstechnadel. Zusätzlich wird infolge der geringeren Kristallitgröße die Gefahr des Auftretens für die Stechnadelspitze schädlicher Biegebeanspruchungen vermindert. Alles das führt zur Erhöhung der Standzeit der Stechnadeln.

Ausführungsbeispiel

Im Elektronenstrahlofen wurde unter Einsatz von Tantal-Sekundärmetall und Niob-Draht eine Tantallegierung mit einem Gehalt von 0,04 w% in % Niob und 0,02 w% in % Molybdän erschmolzen. Der Gußblock wurde nach einer Oberflächenbearbeitung durch Abdrehen kalt verformt. Diese Kaltverformung erfolgte auf einer Freiformschmiedepresse, wobei der Gußblock zu einem Würfel gestaucht und nach einer 90°-Drehung zu einer Platine gepreßt wurde. Der Block wurde während des Umformvorganges durch Kühlen auf einer Raumtemperatur gehalten. Die Platine wurde nach einer weiteren Oberflächenbearbeitung zu 3 mm dicken Band ausgewalzt. Nach der Kaltverformung von insgesamt 98,5 % erfolgte eine Rekristallisationsglühung im Hochvakuum bei 1100 °C/1 h. Nach dem Walzen an Enddicke erfolgte eine abschließende Hochvakuumglühung bei 1200 °C/1 h oder 1000 °C/2 h. Eine röntgenographische Texturanalyse ergab einen im Vergleich zu reinem Tantal erhöhten Anteil der Texturkomponente (100) [110].

Es wurde ein mittlerer Korndurchmesser von 0,015 mm erreicht. Die aus dieser Legierung gefertigten Spinndüsenrohlinge zeichneten sich durch besonders gute Bearbeitungseigenschaften aus. Mit einer Hartmetallstechnadel war die Herstellung von 6240 Düsenlöchern in einer Spinndüse möglich.



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**